

# METHOD AND DEVICE FOR CARRYING OUT CHEMICAL REACTIONS USING A MICROLAMINAR MIXER

Also  
included

**Patent number:** WO9717130  
**Publication date:** 1997-05-15  
**Inventor:** SCHUBERT KLAUS (DE); BIER WILHELM (DE); LINDER GERD (DE); HERRMANN ERHARD (DE); KOGLIN BERND (DE); MENZEL THOMAS (DE); MAUL CHRISTINE (DE)  
**Applicant:** BAYER AG (DE); KARLSRUHE FORSCHZENT (DE); SCHUBERT KLAUS (DE); BIER WILHELM (DE); LINDER GERD (DE); HERRMANN ERHARD (DE); KOGLIN BERND (DE); MENZEL THOMAS (DE); MAUL CHRISTINE (DE)  
**Classification:**  
 - **international:** B01F5/04; B01J19/24  
 - **european:** B01F5/02C; B01F5/06B3C4; B01F13/00M; B01J19/00R; B01J19/18; B01J19/24D  
**Application number:** WO1996EP04665 19961024  
**Priority number(s):** DE19951041266 19951106

## Also published as:

EP0859660 (A1)  
 US6299657 (B1)  
 US6264900 (B1)  
 DE19541266 (A1)

## Cited documents:

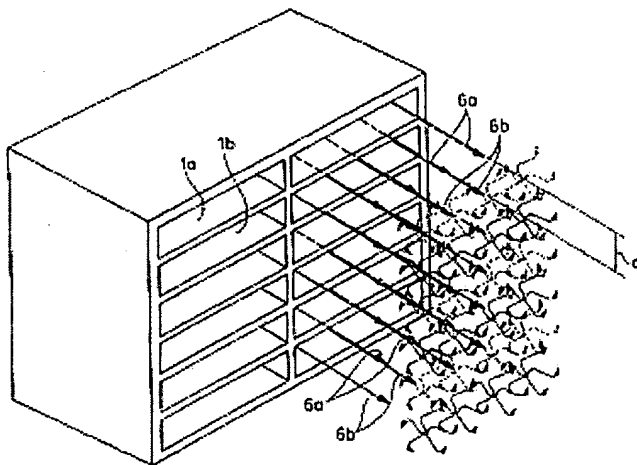
FR1261312  
 DE732632  
 GB612012  
 DE3114195  
 DE2201016  
 more >>

BEST AVAILABLE COPY

Report a data error here

## Abstract of WO9717130

Described is a method of carrying out a reaction between at least two reactants (A, B) each of which is divided by an array of slit-shaped microchannels (1a, 1b) into separate laminae of fluid which subsequently emerge into a common mixing and reaction chamber. The laminae of fluid have a thickness of  $< 1000 \mu\text{m}$ , preferably  $< 100 \mu\text{m}$ , and a width:thickness ratio of at least 10. The invention calls for the reactants (A, B) to be made to emerge into the mixing/reaction chamber as thin laminae of fluid (6a, 6b), each lamina (6a) of reactant A being fed into the mixing/reaction chamber in the immediate vicinity of a lamina (6b) of reactant B. The adjacent laminae (6a, 6b) subsequently mix in the chamber by diffusion and/or turbulence. The mixing process is thus accelerated significantly compared to conventional reactors. With rapid chemical reactions, this enables the formation of undesired side-products or further-reaction products to be avoided to a considerable extent.



Data supplied from the esp@cenet database - Worldwide



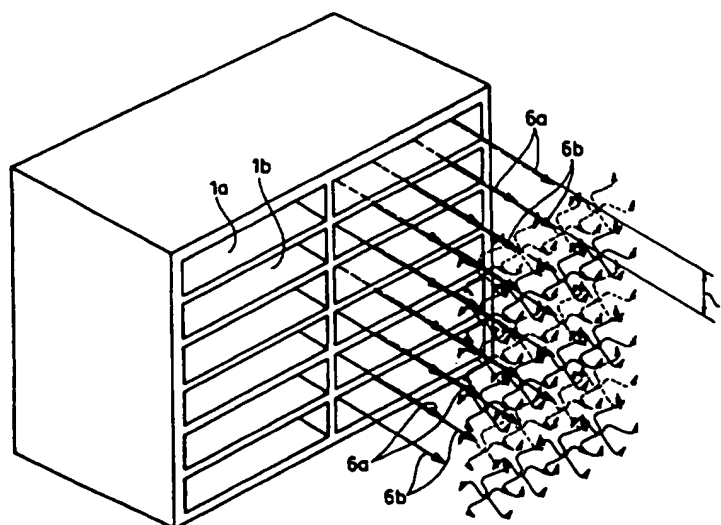
<p>(51) Internationale Patentklassifikation <sup>6</sup> : <b>B01F 5/04, B01J 19/24</b></p>	<b>A1</b>	<p>(11) Internationale Veröffentlichungsnummer: <b>WO 97/17130</b></p> <p>(43) Internationales Veröffentlichungsdatum: 15. Mai 1997 (15.05.97)</p>
<p>(21) Internationales Aktenzeichen: <b>PCT/EP96/04665</b></p> <p>(22) Internationales Anmeldedatum: 24. Oktober 1996 (24.10.96)</p> <p>(30) Prioritätsdaten: 195 41 266.4      6. November 1995 (06.11.95)      DE</p> <p>(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US): <b>BAYER AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE]; D-51368 Leverkusen (DE). FORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE GMBH [DE/DE]; D-76133 Karlsruhe (DE).</b></p> <p>(72) Erfinder; und (75) Erfinder/Anmelder (nur für US): <b>SCHUBERT, Klaus [DE/DE]; Geigersbergstrasse 54, D-76227 Karlsruhe (DE). BIER, Wilhelm [DE/DE]; Grabener Weg 10, D-76344 Eggenstein-Leopoldshafen (DE). LINDER, Gerd [DE/DE]; Stephan-Lochner-Weg 2, D-76149 Karlsruhe (DE). HERRMANN, Erhard [DE/DE]; Felix-von-Roll-Strasse 11, D-51375 Leverkusen (DE). KOGLIN, Bernd [DE/DE]; Am Ganschenwald 6, D-51467 Bergisch Gladbach (DE). MENZEL, Thomas [DE/DE]; Richrath Strasse 248, D-40723 Hilden (DE). MAUL, Christine [DE/DE]; Schnellweider Strasse 56, D-51067 Köln (DE).</b></p>	<p>(74) Gemeinsamer Vertreter: <b>BAYER AKTIENGESELLSCHAFT; D-51368 Leverkusen (DE).</b></p> <p>(81) Bestimmungsstaaten: CA, JP, KR, US, europäisches Patent (AT, BE, CH, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).</p> <p><b>Veröffentlicht</b> <i>Mit internationalem Recherchenbericht.</i></p>	

(54) Title: **METHOD AND DEVICE FOR CARRYING OUT CHEMICAL REACTIONS USING A MICROLAMINAR MIXER**

(54) Bezeichnung: **VERFAHREN UND VORRICHTUNG ZUR DURCHFÜHRUNG CHEMISCHER REAKTIONEN MITTELS EINES MIKROSTRUKTUR-LAMELLENMISCHERS**

(57) Abstract

Described is a method of carrying out a reaction between at least two reactants (A, B) each of which is divided by an array of slit-shaped microchannels (1a, 1b) into separate laminae of fluid which subsequently emerge into a common mixing and reaction chamber. The laminae of fluid have a thickness of < 1000 µm, preferably < 100 µm, and a width:thickness ratio of at least 10. The invention calls for the reactants (A, B) to be made to emerge into the mixing/reaction chamber as thin laminae of fluid (6a, 6b), each lamina (6a) of reactant A being fed into the mixing/reaction chamber in the immediate vicinity of a lamina (6b) of reactant B. The adjacent laminae (6a, 6b) subsequently mix in the chamber by diffusion and/or turbulence. The mixing process is thus accelerated significantly compared to conventional reactors. With rapid chemical reactions, this enables the formation of undesired side-products or further-reaction products to be avoided to a considerable extent.



### (57) Zusammenfassung

Bei dem Reaktionsverfahren werden mindestens zwei Edukte A, B durch eine ihnen jeweils zugeordnete Schar von schlitzförmigen Mikrokanälen (1a, 1b) in räumlich getrennte Fluidlamellen aufgeteilt, die anschliessend in einen gemeinsamen Misch- und Reaktionsraum austreten. Die Fluidlamellen haben dabei eine Dicke  $< 1000 \mu\text{m}$ , vorzugsweise  $< 100 \mu\text{m}$ , bei einem Breiten/Dickenverhältnis von mindestens 10. Wesentlich ist dabei, dass man die Edukte A, B als dünne Fluidlamellen (6a, 6b) in den Misch/Reaktionsraum austreten lässt, wobei jede Fluidlamelle (6a) eines Edukts A in unmittelbarer Nachbarschaft zu einer Fluidlamelle (6b) eines anderen Edukts B in den Misch/Reaktionsraum geführt wird. Die benachbarten Fluidlamellen (6a, 6b) vermischen sich dann anschliessend durch Diffusion and/oder Turbulenz. Dadurch wird der Vermischungsvorgang im Vergleich zu konventionellen Reaktoren wesentlich beschleunigt. Bei schnellen chemischen Reaktionen wird auf diese Weise die Bildung von unerwünschten Neben- bzw. Folgeprodukten weitgehend verhindert.

### LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

AM	Armenien	GB	Vereinigtes Königreich	MX	Mexiko
AT	Österreich	GE	Georgien	NE	Niger
AU	Australien	GN	Guinea	NL	Niederlande
BB	Barbados	GR	Griechenland	NO	Norwegen
BE	Belgien	HU	Ungarn	NZ	Neuseeland
BF	Burkina Faso	IE	Irland	PL	Polen
BG	Bulgarien	IT	Italien	PT	Portugal
BJ	Benin	JP	Japan	RO	Rumänien
BR	Brasilien	KE	Kenya	RU	Russische Föderation
BY	Belarus	KG	Kirgisistan	SD	Sudan
CA	Kanada	KP	Demokratische Volksrepublik Korea	SE	Schweden
CF	Zentrale Afrikanische Republik	KR	Republik Korea	SG	Singapur
CG	Kongo	KZ	Kasachstan	SI	Slowenien
CH	Schweiz	LI	Liechtenstein	SK	Slowakei
CI	Côte d'Ivoire	LK	Sri Lanka	SN	Senegal
CM	Kamerun	LR	Liberia	SZ	Swasiland
CN	China	LK	Litauen	TD	Tschad
CS	Tschechoslowakei	LU	Luxemburg	TG	Togo
CZ	Tschechische Republik	LV	Lettland	TJ	Tadschikistan
DE	Deutschland	MC	Monaco	TT	Trinidad und Tobago
DK	Dänemark	MD	Republik Moldau	UA	Ukraine
EE	Estland	MG	Madagaskar	UG	Uganda
ES	Spanien	ML	Mali	US	Vereinigte Staaten von Amerika
FI	Finnland	MN	Mongolei	UZ	Usbekistan
FR	Frankreich	MR	Mauretanien	VN	Vietnam
GA	Gabon	MW	Malawi		

**Verfahren und Vorrichtung zur Durchführung chemischer Reaktionen mittels eines Mikrostruktur-Lamellenmischers**

5 Zur Durchführung einer chemischen Reaktion in kontinuierlicher Fahrweise müssen die Reaktionspartner kontinuierlich einem chemischen Reaktor zugeführt werden und mit Hilfe eines Mischorgans (Mischers) innig in Kontakt gebracht, d.h. gut vermischt werden. Ein einfacher Reaktor ist z.B. ein Behälter mit einem Rührer als Mischorgan. Im Regelfall laufen im Reaktor bei Kontakt der Reaktanden  
10 mehrere Reaktionen, sogenannte Haupt- und Nebenreaktionen ab. Dabei ist es Ziel des Verfahrensingenieurs, die Reaktionen und damit auch die Vermischung so zu führen, daß selektiv eine möglichst hohe Ausbeute an erwünschtem Produkt erzielt wird.

15 Die Güte der Vermischung und der Einfluß des Mischorgans auf die Ausbeute an erwünschtem Produkt hängt dabei in großem Maße vom Verhältnis der durch die Reaktionskinetik gegebenen chemischen Reaktionsgeschwindigkeit zur Mischgeschwindigkeit ab. Handelt es sich bei den chemischen Reaktionen um langsame Reaktionen, so ist die chemische Reaktion in der Regel wesentlich langsamer als die Vermischung. Die Brutto-Reaktionsgeschwindigkeit und die Ausbeute an erwünschtem Produkt wird dann durch den langsamsten Schritt, nämlich die Kinetiken der ablaufenden chemischen Reaktionen, und dazu durch das globale Vermischungsverhalten (Verweilzeitverteilung, Makromischung) des verwendeten chemischen Reaktors bestimmt. Liegen die chemischen Reaktionsgeschwindigkeiten und die Vermischungsgeschwindigkeit in der gleichen Größenordnung, so kommt es zu  
20 komplexen Wechselwirkungen zwischen den Kinetiken der Reaktionen und dem lokalen, durch die Turbulenz bestimmten Vermischungsverhalten im verwendeten Reaktor und am Mischorgan (Mikromischung). Tritt der Fall ein, daß die chemischen Reaktionsgeschwindigkeiten wesentlich schneller sind als die Mischgeschwindigkeit, so werden die Brutto-Geschwindigkeiten der ablaufenden Reaktionen und die Ausbeuten im wesentlichen durch die Vermischung, d.h. durch das lokale, zeitabhängige Geschwindigkeits- und Konzentrationsfeld der Reaktanden, d.h. die Turbulenzstruktur im Reaktor bzw. am Mischorgan bestimmt [1].  
25  
30

Nach dem Stand der Technik werden zur Durchführung schneller Reaktionen in Konti-Fahrweise eine Reihe von Mischorganen eingesetzt. Man kann hier  
35 unterscheiden zwischen dynamischen Mischern, wie z.B. Rührer, Turbinen oder

Rotor-Stator-Systemen, statischen Mischern, wie z.B. Kenics-Mischern, Schaschlik-Mischern oder SMV-Mischern und Strahlmischern, wie z.B. Düsenmischern oder T-Mischern [2-4].

5 Bevorzugt werden zur schnellen Vermischung der Ausgangsstoffe bei schnellen Reaktionen mit unerwünschten Folge- bzw. Nebenreaktionen Düsenmischer eingesetzt.

10 Bei Strahl- bzw. Düsenmischern wird eine der beiden Ausgangskomponenten mit hoher Strömungsgeschwindigkeit in die andere Komponente verdüst (s. Fig. 1). Dabei wird die kinetische Energie des eingedüsten Strahles (B) im wesentlichen  
15 hinter der Düse dissipiert, d.h. durch turbulenten Zerfall des Strahles in Wirbel und weiteren turbulenten Zerfall der Wirbel in immer kleinere Wirbel in Wärme umgewandelt. In den Wirbeln sind jeweils die Ausgangskomponenten enthalten, die in den Fluidballen nebeneinander vorliegen (Makromischung). Zwar tritt an den Rändern dieser zunächst größeren Strukturen zu Beginn des turbulenten  
20 Wirbelzerfalls eine geringe Mischung durch Diffusion auf. Die vollständige Vermischung wird jedoch erst erreicht, wenn der Wirbelzerfall soweit fortgeschritten ist, daß mit Erreichen von Wirbelgrößen in der Größenordnung des Konzentrations-Mikromaßes (Batchelor-Länge) [5, 6] die Diffusion schnell genug  
ist, um die Ausgangskomponenten in den Wirbeln vollständig miteinander zu vermischen. Die für die vollständige Vermischung nötige Mischzeit hängt neben den Stoffdaten und der Geometrie der Apparatur im wesentlichen von der spezifischen Energiedissipationsrate ab.

25 Die Vermischungsvorgänge bei den häufig zur Anwendung kommenden Mischern nach dem Stand der Technik sind prinzipiell ähnlich (bei dynamischen Mischern und Statikmischern werden die Wirbel noch zusätzlich mechanisch zerteilt bei  
allerdings in der Regel wesentlich niedrigeren spezifischen Energiedissipationsraten). Dies bedeutet, daß bei den nach dem Stand der Technik verwendeten Mischern bis zur vollständigen Vermischung durch Diffusion immer die Zeit des  
30 Wirbelzerfalls vergeht. Für sehr schnelle Reaktionen bedeutet dies, daß entweder sehr hohe Energiedissipationsraten eingestellt werden müssen, um unerwünschte Neben- und Folgereaktionen zu vermeiden oder bei Reaktionen mit noch größeren Reaktionsgeschwindigkeiten die entsprechenden Reaktionen nicht optimal, d.h. nur unter Neben- bzw. Folgeproduktbildung, durchgeführt werden.

Ausgehend von diesem Stand der Technik besteht die Aufgabe der Erfindung in der Bereitstellung eines Verfahrens und einer Vorrichtung, bei der die Mischung schnell erfolgt und die Bildung von Folge- bzw. Nebenprodukten unterdrückt bzw. reduziert wird. Dabei muß erreicht werden, daß die Edukte homogen miteinander gemischt werden, so daß innerhalb kürzester Zeit keine örtlichen und keine zeitlichen Überkonzentrationen der Edukte mehr auftreten. Bei chemisch miteinander reagierenden Fluiden soll eine vollständige Reaktion der Fluide erzielt werden. Bei Bedarf sollte auch die Reaktionswärme effektiv und schnellstmöglich ab- oder zugeführt werden können.

10 Diese Aufgabe wird erfindungsgemäß durch ein Verfahren gelöst, bei dem mindestens zwei Edukte A, B durch eine ihnen zugeordnete Schar von schlitzförmigen Mikrokanälen (Mikroschlitzkanäle) in einem Mikrostruktur-Mischer in räumlich getrennte Fluidlamellen aufgeteilt werden, die dann mit für das jeweilige Edukt gleichen Strömungsgeschwindigkeiten in einen Misch-/Reaktionsraum austreten, wobei jede Fluidlamelle eines Eduktes A in unmittelbarer Nachbarschaft zu einer Fluidlamelle eines anderen Eduktes B in den Misch- und Reaktionsraum geführt wird und sich die benachbarten Fluidlamellen durch Diffusion und/oder Turbulenz miteinander vermischen. Unter einem Mikroschlitzkanal wird dabei ein rechteckförmiger Mikrokanal mit einer Tiefe d verstanden, dessen Breite  $b \geq 10d$  ( $b/d \geq 10$ ), vorzugsweise  $b \geq 20d$  ( $b/d \geq 20$ ) beträgt.

Vorzugsweise werden in den Mikroschlitzkanälen laminare Strömungsbedingungen für die Edukte A, B aufrechterhalten. Es steht jedoch nichts im Wege, gegebenenfalls mit turbulenten Strömungen in den Mikroschlitzkanälen zu arbeiten.

Besonders bewährt hat sich eine Ausführungsform, bei der die Fluidlamellen der Edukte A, B in abwechselnd übereinanderliegenden oder nebeneinanderliegenden Schichten in den Misch-/Reaktionsraum austreten .

Die Geometrie des Mikrostruktur-Lamellenmischers ist in vorteilhafter Weise so ausgelegt, daß die Dicke der Fluidlamellen  $d$  am Eintritt in den Misch-/Reaktionsraum auf einen Wert zwischen  $10 \mu\text{m}$  und  $1000 \mu\text{m}$ , vorzugsweise zwischen  $10 \mu\text{m}$  und  $100 \mu\text{m}$ , eingestellt werden kann. Vorzugsweise wird eine Dicke  $d$  eingestellt, die in der Größenordnung des Konzentrations-Mikromaßes liegt, so daß nach Austritt aus dem Mikrostruktur-Mischer, ohne daß ein weiterer

Wirbelzerfall nötig ist, die Mikromischung der Komponenten schnell durch Diffusion erfolgen kann. Die Breite  $b$  der Fluidlamellen bzw. der Mikroschlitzkanäle, über welche die Lamellen aus dem Mikrostruktur-Lamellenmischer austreten, sollte dabei möglichst groß sein, um durch Verringerung der Wandfläche pro Eduktvolumen den Druckverlust im Mischer möglichst gering zu halten. Die Breite  $b$  kann dabei von Werten im Bereich in der Größenordnung von 0,5 mm bis zu großen Werten im Bereich von mehreren Zentimetern variieren und ist im wesentlichen nur durch die mechanische Stabilität des Bauteils begrenzt. Für die Mischgeschwindigkeit und somit Mischgüte ist dabei eine möglichst geringe Dicke  $d$  der Fluidlamellen entscheidend, dagegen nicht die Breite  $b$ .

Eine Weiterentwicklung des erfindungsgemäßen Verfahrens besteht darin, daß in Nachbarschaft zu einer Fluidlamelle eines Eduktes zusätzlich eine Fluidlamelle eines temperierten inerten Fluids, z.B. zu Heiz- oder Kühlzwecken, in den Misch-/Reaktionsraum eingespeist wird.

Das erfindungsgemäße Verfahren beruht also darauf, daß die Eduktströme A, B zunächst mittels des Mikrostruktur-Lamellenmischers konvektiv in dünne Lamellen mit einer Dicke  $d$  aufgeteilt werden, die sich dann nach dem Austritt im Misch-/Reaktionsraum durch Diffusion und/oder Turbulenz miteinander vermischen.

Die Aufgabe des Mikrostruktur-Lamellenmischers ist es dabei, die Eduktströme konvektiv zu zerteilen und feine Fluidlamellen mit einer charakteristischen Dicke  $d$  zu erzeugen, ohne daß die Ausgangskomponenten innerhalb der Mischer-Vorrichtung miteinander in Kontakt kommen. Durch gleiche geometrische Dimensionierung (gleicher Querschnitt und gleiche Länge) für die jeweils einem Edukt zugeordneten Mikroschlitzkanäle wird sichergestellt, daß aus allen jeweils einem Edukt zugeordneten Kanälen die Fluidlamellen mit gleichen Strömungsgeschwindigkeiten austreten. Bei zwei Edukten A, B sind also die Strömungsgeschwindigkeiten in den Mikroschlitzkanälen jeweils für ein Edukt untereinander gleich. Die Strömungsgeschwindigkeiten der beiden Edukte (im Verhältnis zueinander) können aber durchaus unterschiedlich sein.

Die erfindungsgemäße Vorrichtung ermöglicht es, die Zeit für den turbulenten Wirbelzerfall bei der Vermischung im wesentlichen einzusparen und dadurch den Vermischungsvorgang wesentlich zu beschleunigen. Durch das Zerteilen der Eduktströme in dünne Fluidlamellen der Dicke  $d$  innerhalb der Mikrostruktur, ohne daß die Eduktströme miteinander in Kontakt geraten, und durch die

homogene Verteilung der Edukte am Austritt aus der Mikrostruktur wird das Vermischungsverhalten von nahezu einem idealen Rohrreaktor eingestellt. Bei schnellen Reaktionen treten unerwünschte Neben- bzw. Folgeprodukte in wesentlich geringerem Maße auf als bei Mischern nach dem Stand der Technik.

5 Eine Hauptanwendung sind daher schnelle Reaktionen, die charakteristische Reaktionszeiten  $< 10$  s und insbesondere  $< 1$  s aufweisen. Unter "Reaktionszeit" wird üblicherweise die Halbwertszeit verstanden, d.h. die Zeit nach dem Reaktionsbeginn, nach der die Eduktkonzentration auf den halben Wert abgefallen ist.

10 Als Vorrichtung hat sich ein statischer Mikrostruktur-Lamellenmischer mit wenigstens einer Mischkammer und einem vorgeschalteten Führungsbauteil für die Zufuhr von Misch- bzw. Reaktionsfluiden (Edukte) bewährt. Dabei ist das Führungsbauteil aus mehreren plattenartigen, übereinander geschichteten Elementen zusammengesetzt, die von schräg zur Mikromischer-Längsachse  
15 verlaufenden Mikrokanälen durchzogen sind, wobei sich die Kanäle benachbarter Elemente berührungslos kreuzen und in die Mischkammer einmünden. Diese Vorrichtung ist erfindungsgemäß durch folgende Merkmale gekennzeichnet:

a) Die plattenartigen Elemente bestehen aus dünnen Folien, in die jeweils einzelne bzw. eine Schar eng benachbarter, mit abwechselnder Schräge zur  
20 Mikrovermischer-Längsachse verlaufender schlitzförmiger Mikroschlitzkanäle eingearbeitet ist, so daß beim Übereinanderschichten der Folien je eine Reihe geschlossener Kanäle für die Führung der zu mischenden Fluide (Edukte A, B) entsteht.

b) Die Mikroschlitzkanäle haben eine Tiefe  $d < 1000 \mu\text{m}$ , vorzugsweise  $< 100 \mu\text{m}$ , bei Wanddicken der Zwischenstege und Kanalböden von  $< 1000 \mu\text{m}$ , vorzugsweise  $< 100 \mu\text{m}$  und eine Breite, die mindestens das 10-fache, vorzugsweise das 20-fache der Tiefe  $d$  beträgt.

c) Die Mikroschlitzkanäle benachbarter Folien divergieren zur Fluideintrittsseite des Mikrovermischers hin derart, daß die zu vermischenden  
30 Fluide (Edukte A, B) getrennt einspeisbar sind.

Zur Verbesserung der mechanischen Stabilität können senkrecht zu den Kanalböden Stüfte oder Stege angebracht werden, die mit den Kanalböden fest verbunden sind und sie gegeneinander abstützen.



Alternativ ist zwischen je zwei Folien mit den schrägen, zur Fluideintrittsseite divergierenden Mikroschlitzkanälen eine Zwischenfolie geschaltet, die senkrecht zur Mikrovermischer-Längsachse verlaufende Mikroschlitzkanäle aufweist und zur Durchleitung eines Kühl- oder Heizmittels dient.

- 5      Gemäß einer weiteren Alternative ist an die Mischkammer ein Mikrowärmeübertrager angeschlossen. Die Mischkammer kann aber auch selbst als Mikrowärmeübertrager ausgebildet sein, der unmittelbar an das Führungsbauteil angeschlossen ist.

- 10      Mit der erfindungsgemäßen Vorrichtung werden die zu vermischenden Fluide reihenweise und "auf Lücke" in dünne, benachbarte Fluidlamellen unterteilt, die, beim Eintritt in die Mischkammer zusammengeführt, ein gemeinsames, entsprechend eng begrenztes Volumen ausfüllen und sich dadurch auf schnellstem und kürzestem Weg durchmischen können. Die Ausbildung extrem dünner Fluidlamellen erlaubt es, daß über eine Höhe von 1 cm einige hundert bis tausend  
15      Lamellen über- oder nebeneinander liegen, und diese Fluidlamellen wechselweise durch Edukt A bzw. Edukt B gespeist werden.

- 20      Die erfindungsgemäße Vorrichtung ermöglicht die Mischung zweier oder mehrerer Fluide. Wenn chemisch miteinander reagierende Fluide (Edukte) vermischt werden, können die dabei auftretende (exotherme Reaktionen) oder benötigte (endotherme Reaktionen) Reaktionswärme durch den angeschlossenen Mikrowärmeüberträger abgeleitet oder zugeführt werden.

Bei Verwendung der erfindungsgemäßen Vorrichtung können folgende weitere Vorteile erzielt werden:

- 25      -      Verbesserung von Ausbeute, Selektivität und Produktqualität bei bekannten Reaktionen
- Herstellung von Produkten mit neuen Eigenschaftsprofilen (z.B. höhere Reinheiten)
- Miniaturisierung von Reaktoren und Mischern, ggf. in Kombination mit Wärmetauschern

- Verbesserung des Sicherheitsstandards bei exothermen Reaktionen durch Verringerung des Hold-Up's und ggf. durch Verringerung der Abmessungen der Mikroschlitzkanäle unterhalb des Löschabstands (verbesserte Zündrückschlagsicherung!)
- 5     - Durch die schlitzförmige Gestaltung der Mikrokanäle (Kanalbreite  $b \gg$  Kanaltiefe  $d$ ) wird die Kontaktfläche zwischen Fluid und Kanalwand minimiert. Dies führt beim Mikrostruktur-Lamellenmischer, insbesondere bei einer Kanaltiefe  $d < 100 \mu\text{m}$ , zu deutlich geringeren Reibungsdruckverlusten als in einem Mikrostruktur-Mischer, bei dem die Breite  $b$  der Mikroschlitzkanäle in der Größenordnung der Tiefe  $d$  liegt (annähernd quadratischer Querschnitt).
- 10     - Durch die Erzeugung von Fluidlamellen in der erfindungsgemäßen Vorrichtung anstelle einer größeren Anzahl durch Zwischenwände getrennter Fluidfäden wird die Rückvermischung, die im Zwischenraumbereich zwischen den einzelnen Fluidfäden unmittelbar bei ihrem Eintritt in den Mischraum aufgrund lokaler Wirbel an den Mündungen auftreten kann und damit die Nebenproduktbildung reduziert.
- 15     - Weiterhin ist die Gefahr von Verstopfungen gegenüber dem Mikromischer mit vielen, annähernd quadratischen Mikrokanälen deutlich verringert.
- 20

Im folgenden wird die Erfindung anhand von Ausführungsbeispielen und Zeichnungen näher erläutert. Es zeigen

- Fig. 1           die Vermischung zweier Edukte A,B in einem Glattstrahlmischer bzw. Rohrreaktor (Stand der Technik)
- 25     Fig. 2           die schematische Darstellung von übereinander liegenden Fluidlamellen
- Fig. 3           den prinzipiellen Aufbau einer bevorzugten Ausführungsform des Mikrostruktur-Lamellenmischers für zwei Edukte A, B mit symmetrischen Strömungswegen,

- Fig. 4 die Vermischung der aus dem Mikrostruktur-Lamellenmischer in den Misch- bzw. Reaktionsraum eintretenden, den Edukten A, B zugeordneten Fluidlamellen,
- 5 Fig. 5a und 5b eine Ausführungsform, bei der die räumliche Anordnung der den Edukten A, B zugeordneten Fluidlamellen beim Eintritt in den Misch/Reaktionsraum durch abwechselnd übereinanderliegende bzw. nebeneinanderliegende Schichten charakterisiert ist.
- 10 Fig. 6 ein Fließschema für eine Apparatur zur Untersuchung chemischer Reaktionen, die unter Einsatz der erfindungsgemäßen Vorrichtung ablaufen
- 15 Fig. 7 Ergebnisse bei der Azokupplungsreaktion von  $\alpha$ -Naphthol mit 4-Sulfonsäurebenzoldiazoniumsalz bei dem Einsatz eines Mikrostruktur-Lamellenmischer, im Vergleich zu einem Mikrostruktur-Mischer mit annähernd quadratischem Kanalquerschnitt und zu einem konventionellen und Glattstrahldüsenreaktor
- Fig. 8a mehrere, zu stapelnde Folien als Bauelemente für den Mikrostruktur-Lamellenmischer mit jeweils einem Mikroschlitzkanal pro Folie
- 20 Fig. 8b und 8c zwei Ansichten eines Führungsbauteils aus Folien gem. Fig. 8a
- Fig. 8d schematisch den Strömungsverlauf in einem Mikrostruktur-Lamellenmischer
- 25 Fig. 9a und 9b schematisch einen Mikrostruktur-Lamellenmischer mit kühl- oder heizbarem Führungsbauteil
- Fig. 10a einen Schnitt durch einen Mikrostruktur-Lamellenmischer, an dessen Mischkammer ein Wärmeübertrager angeschlossen ist

Fig. 10b        einen Mikrostruktur-Lamellenmischer mit einer als Wärmeübertrager ausgebildeten Mischkammer.

Gemäß Fig. 1 werden einem Glatstrahlmischer bzw. Glatstrahldüsenreaktor nach dem Stand der Technik zwei miteinander reagierende Edukte A,B zugeführt. Dabei wird hier das Edukt B in den durch den konzentrischen Ringraum zwischen der Düse und der Reaktorwand zugeführten Eduktstrom A mit einer unterschiedlichen Strömungsgeschwindigkeit eingedüst. Es kommt zu einer intensiven Vermischung (Wirbelbildung) und zum sofortigen Einsatz der chemischen Reaktion zwischen den Edukten bzw. Reaktanden A,B.

Fig. 2 zeigt das der Erfindung zugrunde liegende Prinzip der alternierend übereinander geschichteten Fluidlamellen. Auf eine aus dem Fluid A bestehende Lamelle folgt jeweils eine Lamelle aus dem Fluid B. Dabei ist die Dicke  $d$  der Lamellen klein gegenüber ihrer Breite  $b$ . Die Fluide A,B können aus einem Gas oder einer Flüssigkeit bestehen und werden im folgenden als Edukte A,B bezeichnet.

In Fig. 3 ist eine der erfindungsgemäßen Vorrichtung entsprechende Ausführung eines Mikrostruktur-Lamellenmischers bzw. -reaktors schematisch dargestellt. Das Bauprinzip dieses Mixers/Reaktors beruht darauf, daß verschiedene Lagen der Platten mit schrägverlaufenden Mikroschlitzkanälen vertikal übereinander in Sandwichbauweise gestapelt sind.

Auf eine Platte mit den Mikroschlitzkanälen 1a folgt jeweils eine Platte mit den Mikroschlitzkanälen 1b, d.h. zwei im Stapel unmittelbar übereinander angeordnete Platten sind jeweils mit einer Schar von Mikroschlitzkanälen 1a, 1b versehen, wobei die Mikroschlitzkanalscharen aufeinanderfolgender Platten einen Winkel  $\alpha$  miteinander bilden und symmetrisch zur Horizontalachse in Fig. 3, d.h. spiegelbildlich zueinander angeordnet sind. Die Platten haben z.B. eine Dicke von  $100\text{ }\mu\text{m}$ . Die Schlitzkanäle haben z.B. eine Tiefe  $d$  von  $70\text{ }\mu\text{m}$  und eine Breite  $b > 700\text{ }\mu\text{m}$ .

Die in Fig. 3 von der Bildmitte aus gesehen schräg nach oben verlaufenden Scharen von Mikroschlitzkanälen 1a münden linksseitig in eine Verteilerkammer 3a, der ein Reaktand oder Edukt A zugeführt werden kann. Analog münden die schräg nach unten verlaufenden Scharen der Mikroschlitzkanäle 1b linksseitig in eine Verteilerkammer 3b, der ein Edukt B (Reaktand) zugeführt werden kann.

Beide Scharen von Mikroschlitzkanälen münden rechtsseitig, ohne sich zu durchkreuzen, in einen gemeinsamen Misch-/Reaktionsraum 4 ein. Die spiegelsymmetrische Anordnung der Mikroschlitzkanäle 1a, 1b ist nicht zwingend erforderlich. Die Mikroschlitzkanäle 1b können z.B. auch eine andere Neigung gegen die Horizontalachse haben als die Mikroschlitzkanäle 1a.

Wichtig ist jedoch, daß die Mikroschlitzkanäle einer Schar jeweils strömungstechnisch untereinander gleich sind, d.h. daß die Mikroschlitzkanäle 1a alle den gleichen Strömungswiderstand besitzen. Die gleiche Bedingung gilt für den Strömungswiderstand der Mikroschlitzkanäle 1b, wobei aber die Strömungswiderstände der beiden Mikrokanalscharen 1a, 1b (im Verhältnis zueinander) unterschiedlich sein können. Gleicher Strömungswiderstand kann dadurch erreicht werden, daß die Länge und der Querschnitt für alle Mikroschlitzkanäle 1a gleich sind.

Das einer Verteilerkammer 3a, 3b zugeführte Edukt, z.B. ein gasförmiger Reaktand, verteilt sich jeweils auf die Mikroschlitzkanäle 1a, 1b. Die Zusammenführung der beiden Reaktanden erfolgt beim Eintritt in den Misch-/Reaktionsraum und wird im Folgenden anhand der Fig. 4 und 5 näher beschrieben. In Fig. 4 ist der Mündungsquerschnitt des Mikrostruktur-Lamellenmischers perspektivisch dargestellt.

In der obersten Lage oder Platte münden z.B. die dem Edukt A zugeordneten Mikroschlitzkanäle 1a und in der darauffolgenden darunterliegenden Lage oder Platte die Mikroschlitzkanäle 1b des Eduktes B in den Misch-/Reaktionsraum ein. Darauf folgt wieder eine Lage oder Platte mit den zum Edukt A gehörenden Mikroschlitzkanälen usw.. In Fig. 4 ist auch schematisch dargestellt, wie die in den Mikroschlitzkanälen geführten Fluidströme als Fluidlamellen 6a, 6b in den Misch/Reaktionsraum eintreten und sich mit zunehmender Entfernung von der Mündung untereinander vermischen. Die Mischung erfolgt dabei durch Diffusion und/oder Turbulenz, während in den Mikroschlitzkanälen in der Regel laminare Strömungsbedingungen vorherrschen. Gleichzeitig mit der Mischung setzt auch die Reaktion der Edukte A, B ein. Das Reaktionsprodukt wird am Ende des Misch/Reaktionsraums abgenommen (s. Fig. 3). In Fig. 5 ist noch einmal gezeigt, in welcher räumlichen Reihenfolge die Edukte A, B am Mündungsquerschnitt in den Misch/Reaktionsraum eintreffen. Eine Schicht mit Fluidlamellen des Eduktes A grenzt also jeweils an eine Schicht der Fluidlamellen des Eduktes B an. Die Anordnung kann natürlich auch um 90 ° gedreht werden, so daß die Schichten nebeneinander liegen.

Der Mikrostruktur-Lamellenmischer gemäß Fig. 3 kann auch in der Weise modifiziert werden, daß drei oder mehr Edukte in jeweils getrennte Scharen von Mikroschlitzkanälen aufgeteilt werden, die dann im Misch-/Reaktionsraum zusammengeführt werden. Eine verfahrenstechnisch interessante Variante besteht darin, daß das dritte Edukt aus einem temperierten inerten Fluid besteht. Die Fluidlamellen werden dann im Mikrostruktur-Lamellenmischer so geführt, daß in Nachbarschaft zu einer Fluidlamelle eines Eduktes eine Fluidlamelle des temperierten inerten Fluids zu Heiz- oder Kühlzwecken in den Misch/Reaktionsraum eingespeist wird.

- 10 Nachfolgend wird anhand der Figuren 8a bis 10b eine praktische Ausführung des Mikrostruktur-Lamellenmischers beschrieben, die sich besonders bewährt hat.

Die Folien 1 bzw. 2 gemäß Fig. 8a haben eine Dicke von 100  $\mu\text{m}$ . Die Foliensorte 1 ist von einem bzw. einer Schar vorzugsweise paralleler, eng benachbarter und schräg zur Vermischerlängsachse 3 verlaufender Mikroschlitzkanäle durchzogen, die von hinten links beginnend gegenüber dieser Achse 3 einen spitzen Winkel  $+\alpha$  haben und im mittleren Bereich der vorderen Folienlängsseite münden. Dargestellt ist in Abb. 8a eine Ausführung mit jeweils einem Mikroschlitzkanal pro Folie. Die Foliensorte 2 ist in derselben Art und Weise von einem Mikroschlitzkanal 1b durchzogen; jedoch beträgt hier der Winkel zwischen Nutenlängsachse und Vermischerlängsachse  $-\alpha$ ; d.h. der Mikroschlitzkanal 1b verläuft von rechts hinten zum mittleren Bereich der vorderen Folienlängsseite. Der Betrag des Winkels muß jedoch nicht der gleiche sein. Die Mikroschlitzkanäle 1a, 1b können z. B. mit Formdiamanten eingearbeitet werden und haben vorzugsweise eine Breite  $b > 700 \mu\text{m}$  und eine Tiefe  $d$  von 70  $\mu\text{m}$ . Die Stärke der Kanalböden 5a, 5b beträgt 30  $\mu\text{m}$ .

Im Fall breiter Mikroschlitzkanäle kann es zweckmäßig sein, die Folien bzw. die Kanalböden 5a, 5b durch senkrecht angeordnete, durchgehende Stifte 15 oder Stege mit kleinen Querabmessungen, die an den Kanalböden angeschweißt werden, gegeneinander abzustützen. Auf diese Weise können die Mikroschlitzkanäle 1a, 1b ohne Beeinträchtigung der mechanischen Stabilität beliebig breit ausgeführt werden.

Abb. 8b und 8c zeigen, wie für die Herstellung eines Führungsbauteils 6 die Foliensorten 1 und 2 abwechselnd übereinandergeschichtet, mit einer oberen und einer unteren Deckplatte 7a, 7b versehen und z. B. mittels Diffusionsschweißen zu

einem homogenen, vakuumdichten und druckfesten Mikrostrukturkörper verbunden werden.

5 Diese Mikroschlitzkanäle 1a, 1b bilden einen gemeinsamen, z.B. quadratischen Querschnitt aufweisenden Block mit einer Dichte von einigen zehn bis einigen hundert Mündungen pro  $\text{cm}^2$ , die an die gemeinsame Mischkammer 4 angrenzen. Fig. 8c zeigt das Führungsbauteil 6 von der Zuströmseite der Fluide A und B aus gesehen. Wie hieraus und aus der Draufsicht gemäß Fig. 8d zu ersehen ist, divergieren die zur Längsachse 3 schräg verlaufenden Kanäle 1a, 1b von der Mischkammer 4 aus abwechselnd zur Fluideintrittsseite hin so, daß die Fluide A und B über je eine Eintrittskammer oder Verteilerkammer 3a und 3b getrennt dem Führungsbauteil 6 zugeführt werden können. Nach dem Austritt aus dem Führungsbauteil 6 werden die feinen Fluidlamellen 6a, 6b der Fluide A und B innig miteinander vermischt und bilden in der Mischkammer 4 eine gemeinsame Strömung C (siehe auch Fig. 4).

15 Die Fig. 9a und 9b zeigen eine Variante, bei der zwischen zwei Foliensorten 1 und 2 bzw. zwischen die Folien und die Deckplatten 7a, 7b Zwischenfolien 8 geschaltet sind, die senkrecht zur Längsachse 3 verlaufende Mikroschlitzkanäle 9 aufweisen zur Durchleitung eines Kühl- oder Heizmittels. Dadurch kann die Vermischungszeit und die Reaktionsgeschwindigkeit der Fluide A und B beeinflusst werden.

20 In Fig. 10a ist ein Führungsbauteil 6 entsprechend den Fig. 8a bis 8d im Schnitt dargestellt mit angeschlossener Mischkammer 4. An diese Mischkammer ist ein Wärmeübertrager 10 angeschlossen, der ähnlich wie bei der Variante gemäß Fig. 9a und 9b von quer zur Strömungsrichtung C verlaufenden Kanälen 11a durchzogen ist zur Ab- bzw. Zufuhr der Reaktionswärme aus bzw. zu den Kanälen 11b.

25 In Fig. 10b ist der Wärmeübertrager 12 direkt an das Führungsbauteil 13 angeschlossen. Dabei ist die Anordnung durch Distanzfolien 14 so getroffen, daß je zwei übereinanderliegende Kanäle 13a, 13b für die Fluide A, B je in einen gemeinsamen Teilmischraum 12a des Wärmeübertragers ausmünden, wobei diese Teilmischräume 12a an Folien 12b angrenzen, die quer zur Strömungsrichtung C verlaufende Kanäle 12c aufweisen. Diese Kanäle 12c führen ein Kühl- oder Heizmittel, mit dem bezüglich der Misch- und Reaktionszonen 12a Wärme ab- oder zugeführt werden kann.

**Beispiel**

Zur Beurteilung des Vermischungsverhaltens verschiedenster Vermischer-Vorrichtungen wird in der Literatur die Azokupplungsreaktion von  $\alpha$ -Naphthol mit 4-Sulfonsäurebenzoldiazoniumsalz eingesetzt [2, 8, 9]. Diese Reaktion entspricht einem Reaktionsschema, bestehend aus der gewünschten Hauptreaktion und einer unerwünschten konkurrierenden Folgereaktion, in der das über die Hauptreaktion gebildete Produkt mit unreaktiertem Edukt zu einem unerwünschten Folgeprodukt reagiert. Das Folgeprodukt kann auf einfache Weise mit Hilfe von Absorptionsspektren analysiert werden. Die Güte des Mischvorganges wird dabei durch die Selektivität des unerwünschten Folgeproduktes S,  $X_S$ , beurteilt. Je mehr S gebildet wird, desto schlechter ist die Vermischung.

Die Untersuchungen zur Durchführung schneller chemischer Reaktionen mittels Mikrostruktur-Mischung erfolgten in der in Fig. 6 dargestellten Apparatur. Sie besteht aus den Vorlagebehältern 5 für die Ausgangskomponenten A und B, den Dosier- und Regelvorrichtungen 6, Filtern 7 zum Schutz des Mikrostruktur-Mischers vor Verstopfungen, dem Mikrostruktur-Mischer 8 und dem Auffangbehälter 9 für das Produktgemisch. Der Mikrostruktur-Lamellenmischer verfügt über Schlitzkanäle mit einer Tiefe d von 70  $\mu\text{m}$  und einer Breite b von 4 mm. Der Mikrostruktur-Lamellenmischer wurde dabei mit einem Mikrostruktur-Mischer mit rechteckförmigen Mikrokanälen, die Freistrahlen der Breite 100  $\mu\text{m}$  und der Dicke 70  $\mu\text{m}$  erzeugen, verglichen. Weiterhin wurde eine konventionelle Glatzstrahldüse in den Vergleich einbezogen. Die Strahlen in den beiden Mikrostruktur-Mischern waren so angeordnet, daß die Komponenten A bzw. B in abwechselnd übereinander angeordneten Schichten aus dem Mischer austraten.

Es wurden Volumenstromverhältnisse von  $\alpha = V_A/V_B$  von 10 eingestellt. Dabei wurde bei Leistungskennzahlen  $\Psi > 10^2$  gearbeitet. Die reaktionskinetischen Daten und die Vorschrift für die Anwendung der Modellreaktionen sind der Literatur zu entnehmen [2, 8, 9, 10].

Vorgegeben wurde ein stöchiometrisches Verhältnis von 1,05 und eine konstante Naphthol-Ausgangskonzentration von 1,37 mol/m<sup>3</sup>. Die Leistungskennzahl  $\Psi$  berechnet sich folgendermaßen:

$$\Psi = (\Delta p_{\text{Naph}} \cdot V_{\text{Naph}} + \Delta p_{\text{Sulf}} \cdot V_{\text{Sulf}}) / \{k_2 \cdot c_{a0} \cdot \eta \cdot (V_{\text{Naph}} + V_{\text{Sulf}})\}$$

mit



	$\Delta p_{\text{Naph.}}$	Stoßverlust Naphthol-Lösung im Mischer
	$\Delta p_{\text{Sulf.}}$	Stoßverlust Sulfanilsäure-Lösung im Mischer
	$V_{\text{Naph.}}$	Volumenstrom Naphthol-Lösung
	$V_{\text{Sulf.}}$	Volumenstrom Sulfanilsäure-Lösung
5	$k_2$	Reaktionsgeschwindigkeitskonstante d. unerwünschten Folgereaktion
	$c_{a0}$	Ausgangskonzentration Naphthol
	$\eta$	dyn. Viskosität

In Fig. 7 ist die Selektivität des unerwünschten Folgeproduktes  $X_S$  gegen die Leistungskennzahl  $\Psi$  aufgetragen.

- 10 Es zeigt sich, daß für das Volumenstromverhältnis  $\alpha = 10$  bei gleicher Leistungskennzahl bei Einsatz des Mikrostruktur-Lamellenmischers und Mikrostruktur-Mischers wesentlich weniger unerwünschtes Folgeprodukt gebildet wird als bei Verwendung einer konventionellen Glattdüse. Dieser Befund ist
- 15 völlig überraschend, wenn man von der bestehenden Lehrmeinung ausgeht, daß die Mischintensität allein durch die Leistungskennzahl und die Stoffdaten bestimmt wird. Dabei ist das Vermischungsverhalten des Mikrostruktur-Lamellenmischers etwa gleich dem des Mikrostrukturmischers, wobei wesentliche Vorteile des Mikrostruktur-Lamellenmischers darin bestehen, daß der Reibungsdruckverlust mindestens um einen Faktor 3 kleiner ist und eine geringere, durch Verwirbelung
- 20 am Eintritt in den Misch-/Reaktionsraum bedingte Rückvermischung aufgrund einer geringeren Anzahl von Fluidelementen auftritt.

**L i t e r a t u r**

- [1] Brodkey, R. S. (ed.)  
Turbulence in Mixing Operations  
Theory and Application to Mixing and Reaction  
5 Academic Press, Inc., New York, San Francisco, London, 1975
- [2] Tebel, K. H.; May, H.-O.  
Der Freistrahrohrreaktor - Ein effektives Reaktordesign zur Unterdrückung von  
Selektivitätsverlusten durch schnelle, unerwünschte Folgereaktionen  
Chem.-Ing.-Tech. MS 1708/88, Synopse in Chem.-Ing.-Tech. 60, 1988
- 10 [3] Zehner, P.; Bittins, K.  
Düsenreaktoren  
Fortschr. Verf. Technik 23, 1985, 373
- [4] Tosun, G.  
A Study of Micromixing in T- Mixers  
15 Ind. Eng. Chem. Res. 26, 1987, 1184
- [5] Batchelor, G. K.  
Small-scale Variation of Convected Quantities Like Temperature in Turbulent  
Fluid  
J. Fluid Mech. 5, 1959, 113
- 20 [6] Baldyga, J.; Bourne, J. R.  
Micromixing in Inhomogeneous Turbulence  
Chem. Eng. Sci. 43, 1988, 107
- [7] Schmidt, P.; Caesar, C.  
Mikroreaktor zur Durchführung chemischer Reaktionen mit starker Wärmetönung  
25 und Offenlegungsschrift DE 39 26 466 A 1
- [8] Brodkey, R. S.  
Fundamentals of Turbulent Motion, Mixing and Kinetics  
Chem. Eng. Commun. 8, 1981, 1
- [9] Bourne, J. R.; Hilber, C.; Tovstiga, G.

Kinetics of the Azo Coupling Reactions Between 1-Naphthol and Diazotized Sulfphanilic Acid; Chem. Eng. Commun. 37, 1985, 293

- 5 [10] Bourne, J. R.; Kozicki, F.; Rys, P.  
Mixing and Fast Chemical Reaction I:  
Test Reactions to Determine Segregation  
Chem. Eng. Sci. 36, 1981, 1643

**Patentansprüche**

1. Verfahren zur Durchführung chemischer Reaktionen zwischen gasförmigen und/oder flüssigen Reaktionspartnern (Edukte), bei dem mindestens zwei Edukte A, B durch eine ihnen jeweils zugeordnete Schar von Mikrokanälen (in räumlich getrennte Mikroströme aufgeteilt werden, die anschließend in einen gemeinsamen Misch- und Reaktionsraum austreten, dadurch gekennzeichnet, daß man die Mikroströme in Form von Fluidlamellen der Edukte A, B aus schlitzförmig ausgebildeten Mikrokanälen (1a,1b) (Mikroschlitzkanäle) mit für das jeweilige Edukt gleichen Strömungsgeschwindigkeiten in den Misch-/Reaktionsraum (4) austreten läßt, wobei jede Fluidlamelle eines Eduktes A in unmittelbarer Nachbarschaft zu einer Fluidlamelle eines anderen Eduktes B in den Misch- und Reaktionsraum (4) geführt wird und sich die benachbarten Fluidlamellen durch Diffusion und/oder Turbulenz miteinander vermischen.

5

10
  2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß in den Mikroschlitzkanälen (1a,1b) laminare Strömungsbedingungen für die Edukte A, B aufrechterhalten werden.

15
  3. Verfahren nach Anspruch 1 bis 2, dadurch gekennzeichnet, daß die Fluidlamellen der Edukte A, B in abwechselnd übereinanderliegenden oder nebeneinanderliegenden dünnen Schichten in den Reaktionsraum (4) austreten.

20
  4. Verfahren nach Anspruch 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß die Dicke der Fluidlamellen am Eintritt in den Misch-/Reaktionsraum (4) auf einen Wert zwischen 10 µm und 1000 µm, vorzugsweise zwischen 10 µm und 100 µm eingestellt wird.

25
  5. Verfahren nach Anspruch 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, daß in Nachbarschaft zu einer Fluidlamelle eines Eduktes zusätzlich eine Fluidlamelle eines temperierten Inertfluids in den Misch-/Reaktionsraum (4) eingespeist wird.
  6. Mikrostruktur-Lamellenmischer mit wenigstens einer Mischkammer und einem vorgeschalteten Führungsbauteil für die Zufuhr von zu mischenden Fluiden zu der Mischkammer, wobei das Führungsbauteil aus mehreren
- 30

plattenartigen, übereinandergeschichteten Elementen zusammengesetzt ist, die von schräg zur Mikro-Vermischer-Längsachse verlaufenden Kanälen durchzogen sind, und wobei die Kanäle benachbarter Elemente sich berührungslos kreuzen und in die Mischkammer ausmünden, gekennzeichnet durch folgende Merkmale:

a) die plattenartigen Elemente bestehen aus dünnen Folien (1, 2), in die je ein einzelner bzw. eine Schar benachbarter, mit abwechselnder Schräge zur Mikro-Vermischer-Längsachse (3) verlaufender schlitzförmiger Mikroschlitzkanäle (1a, 1b) eingearbeitet ist, so daß beim Übereinanderschichten der Folien (1, 2) je ein einzelner bzw. eine Reihe (1a bzw. 1b) geschlossener Kanäle für die Führung der zu mischenden Fluide (A, B) entsteht;

b) die Mikroschlitzkanäle (1a, 1b) haben eine Tiefe d von  $< 1000 \mu\text{m}$ , vorzugsweise  $< 100 \mu\text{m}$ , eine Breite b, die mindestens das 10-fache der jeweils gewählten Tiefe d beträgt (d.h.  $b/d \geq 10$ ) und eine Wanddicke der Kanalböden (5a, 5b) von  $< 1000 \mu\text{m}$ , vorzugsweise  $< 100 \mu\text{m}$ ;

c) die an die Mischkammer (4) angrenzenden Mündungen der Kanäle (1a, 1b) liegen fluchtend übereinander, wobei die Kanäle (1a, 1b) benachbarter Folien zur Fluideintrittsseite (3a, 3b) des Mikrovermischers hin so divergieren, daß die zu vermischenden Fluide (A, B) getrennt einspeisbar sind.

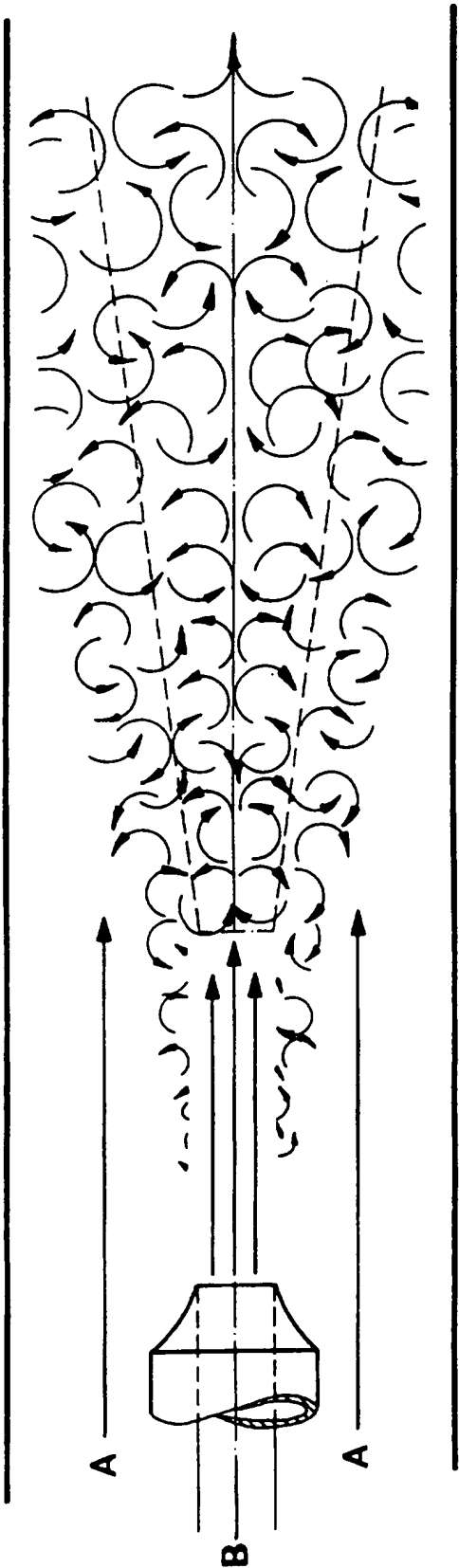
7. Mikrostruktur-Lamellenmischer nach Anspruch 6, dadurch gekennzeichnet, daß die Kanalböden (5a, 5b) in regelmäßigen Abständen durch fest mit den Kanalböden (5a, 5b) verbundene Stifte (15) abgestützt sind.

8. Mikrostruktur-Lamellenmischer nach Anspruch 6, dadurch gekennzeichnet, daß zwischen je zwei Folien (1, 2) mit den schrägen, zur Fluideintrittsseite divergierenden Mikroschlitzkanälen eine Zwischenfolie (8) geschaltet ist, die senkrecht zur Mikro-Vermischer-Längsachse (3) verlaufende Mikroschlitzkanäle (9) aufweist zur Durchleitung eines Kühl- oder Heizmittels.

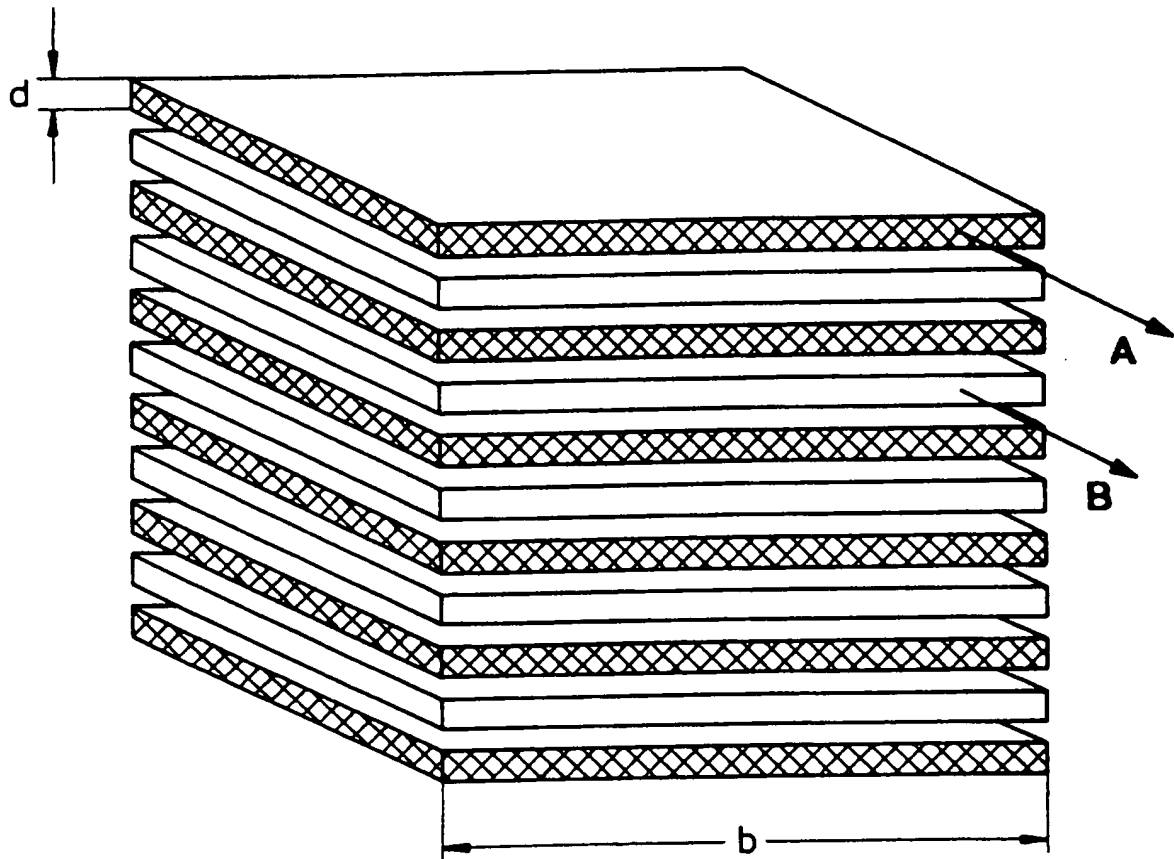
9. Mikrostruktur-Lamellenmischer nach Anspruch 6 oder 7, dadurch gekennzeichnet, daß an die Mischkammer (4) ein Mikrowärmeübertrager (10) angeschlossen ist.
- 5 10. Mikrostruktur-Lamellenmischer nach Anspruch 6 oder 7, dadurch gekennzeichnet, daß die Mischkammer als Mikrowärmeübertrager ausgebildet ist, der unmittelbar an das Führungsbauteil (13) angeschlossen ist.

.. 1 / 10 "

Fig. 1

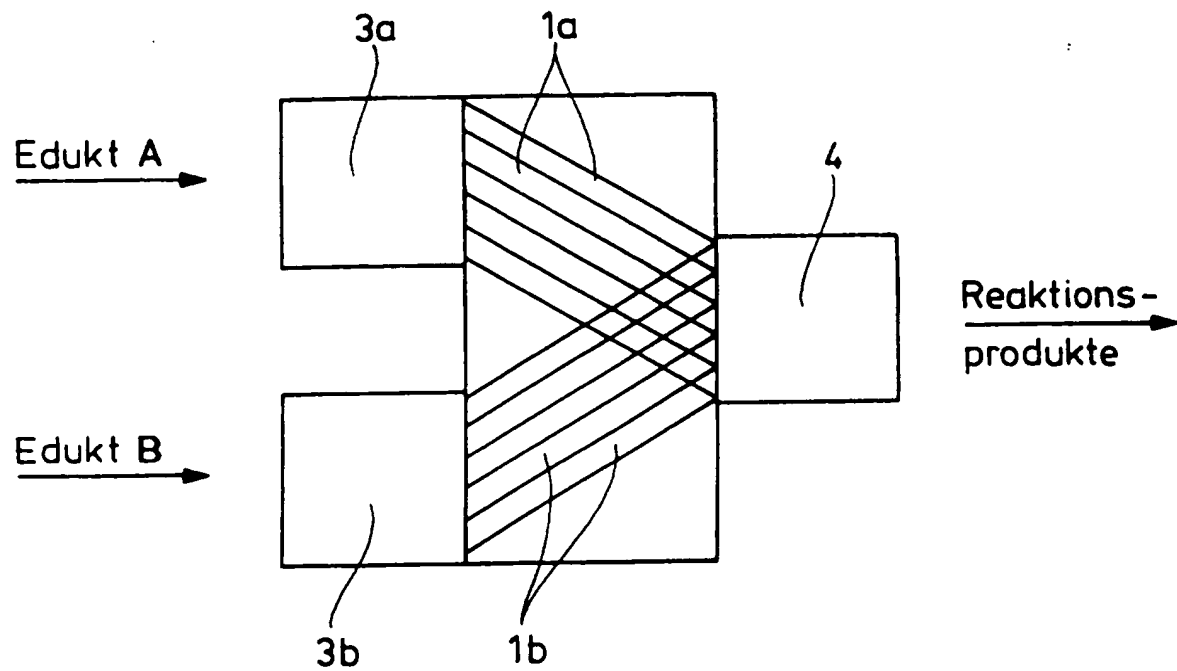


„ 2 / 10 ”

**Fig. 2**



„ 3 / 10 ”

**Fig. 3****Fig. 5a**

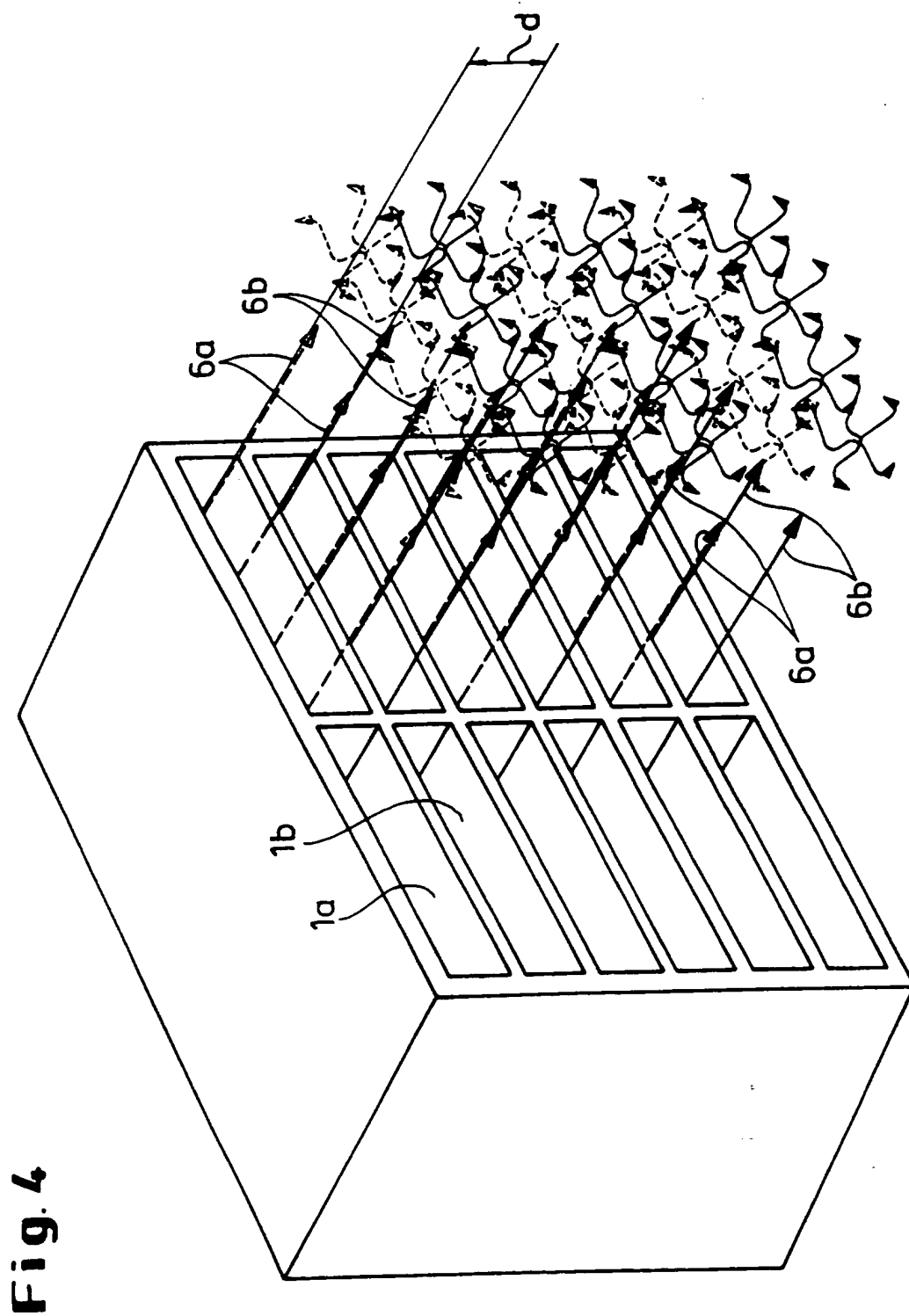
A	A	A	A	A	A
B	B	B	B	B	B
A	A	A	A	A	A
B	B	B	B	B	B
A	A	A	A	A	A
B	B	B	B	B	B

**Fig. 5b**

A diagram showing a cross-section of a reactor bed. It consists of a 6x6 grid of alternating letters "A" and "B". The letters are arranged in a checkerboard pattern: the top row is A B A B A B, the second row is B A B A B A, and so on. Diagonal lines run from the top-left to the bottom-right, passing through the letters. An arrow points from the "Fig. 5b" label to the top-right corner of the grid.

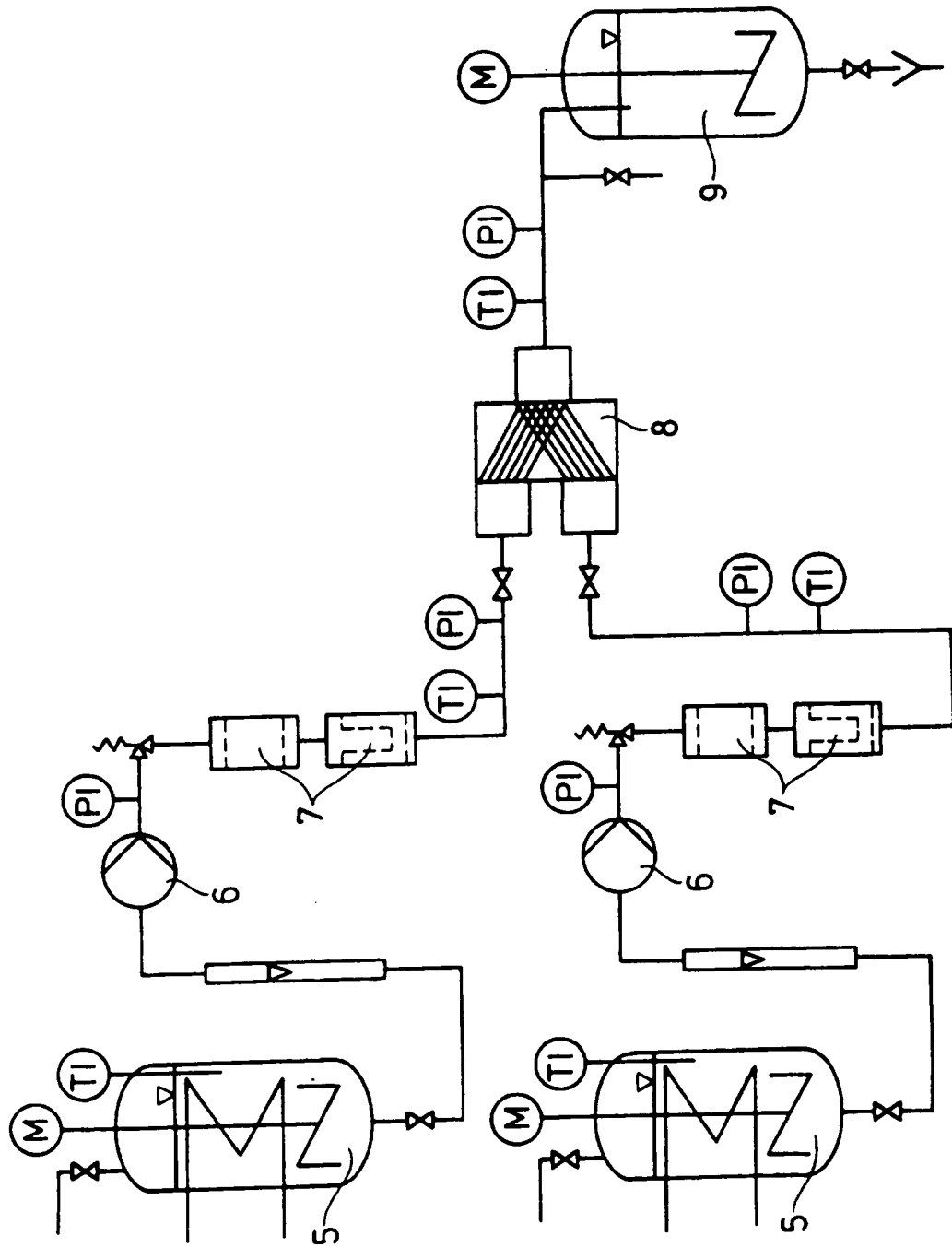
A	B	A	B	A	B
B	A	B	A	B	A
A	B	A	B	A	B
B	A	B	A	B	A
A	B	A	B	A	B
B	A	B	A	B	A

„ 4 / 10 ”

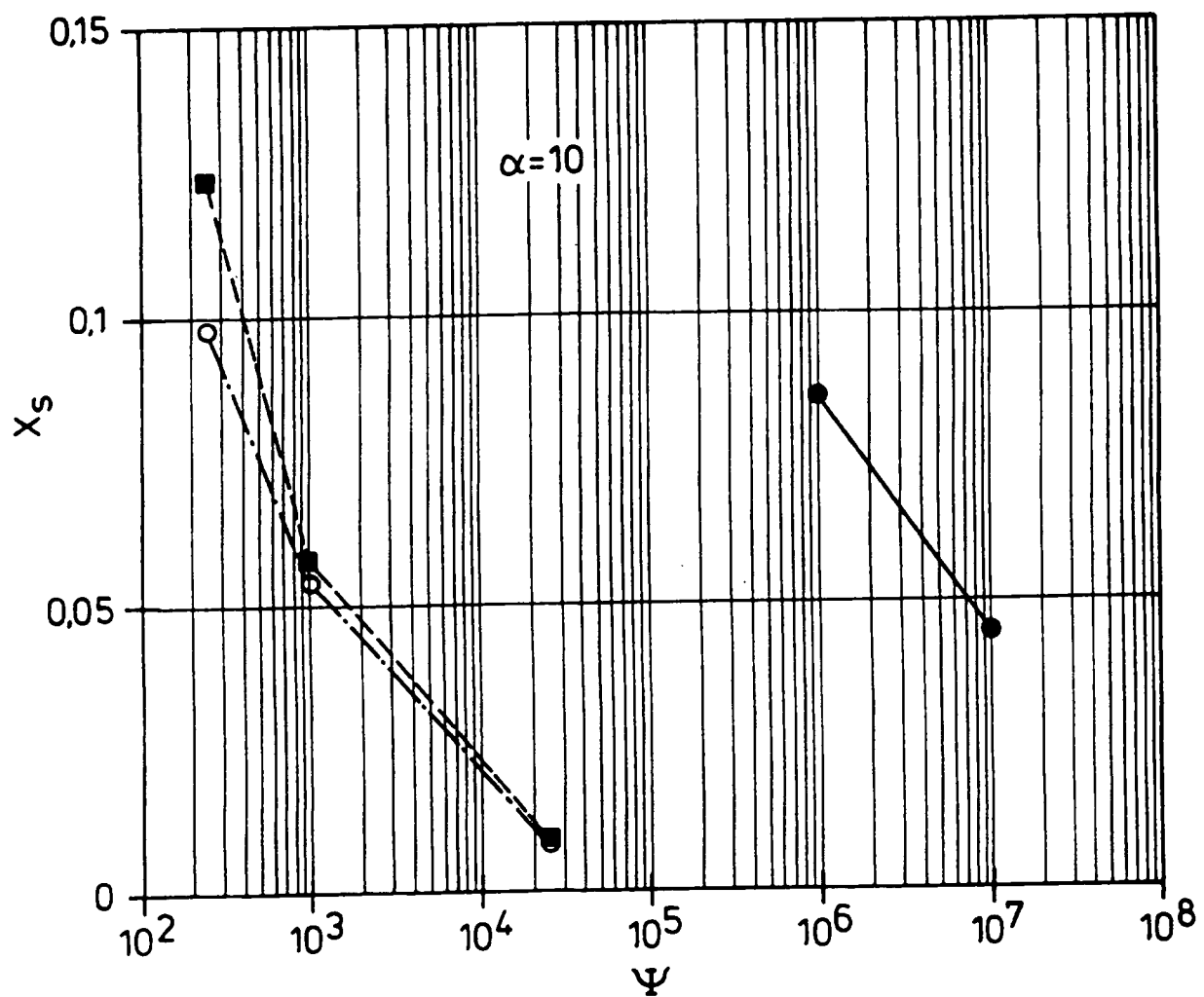


„ 5 / 10 “

Fig. 6

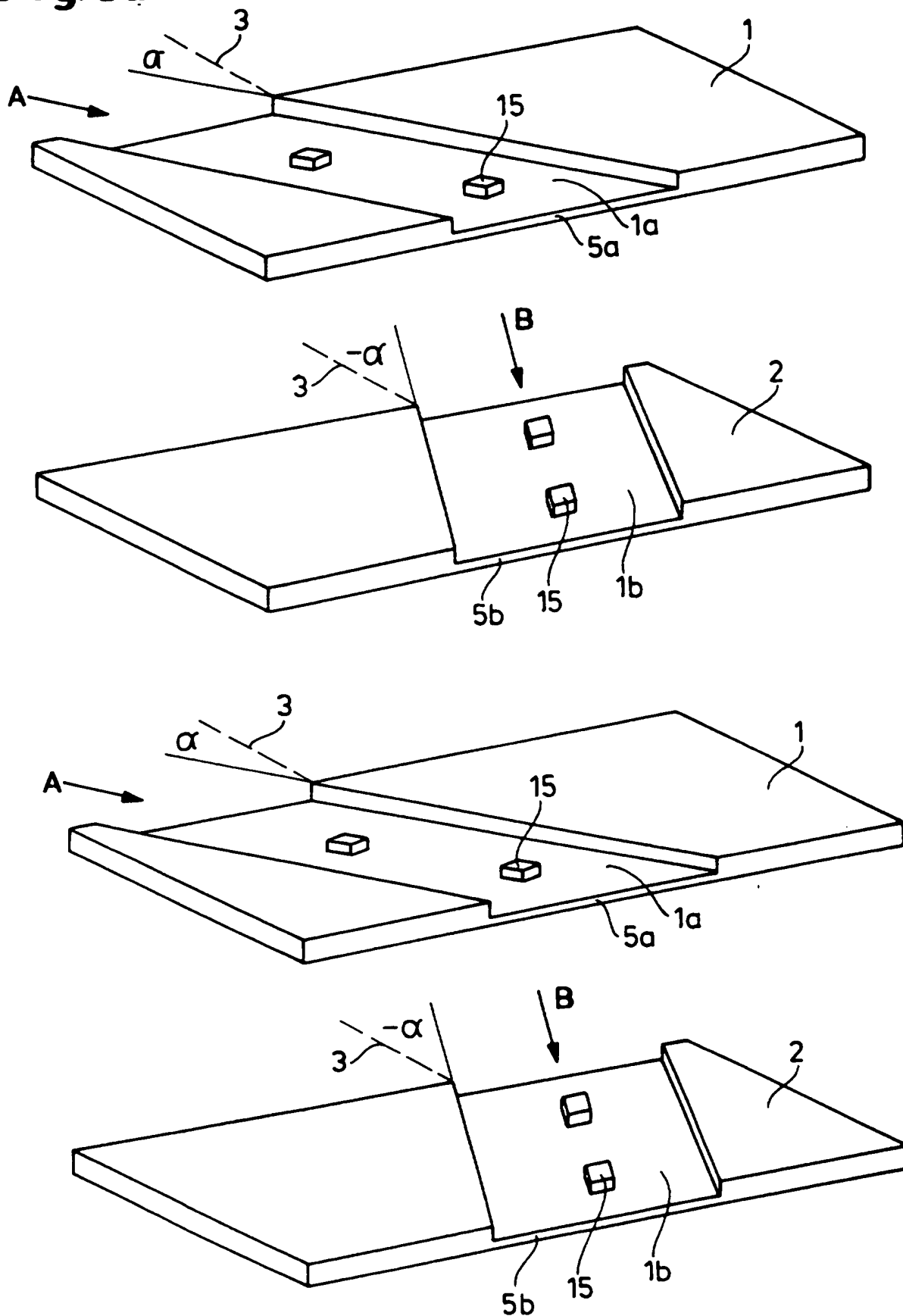


.. 6 / 10 "

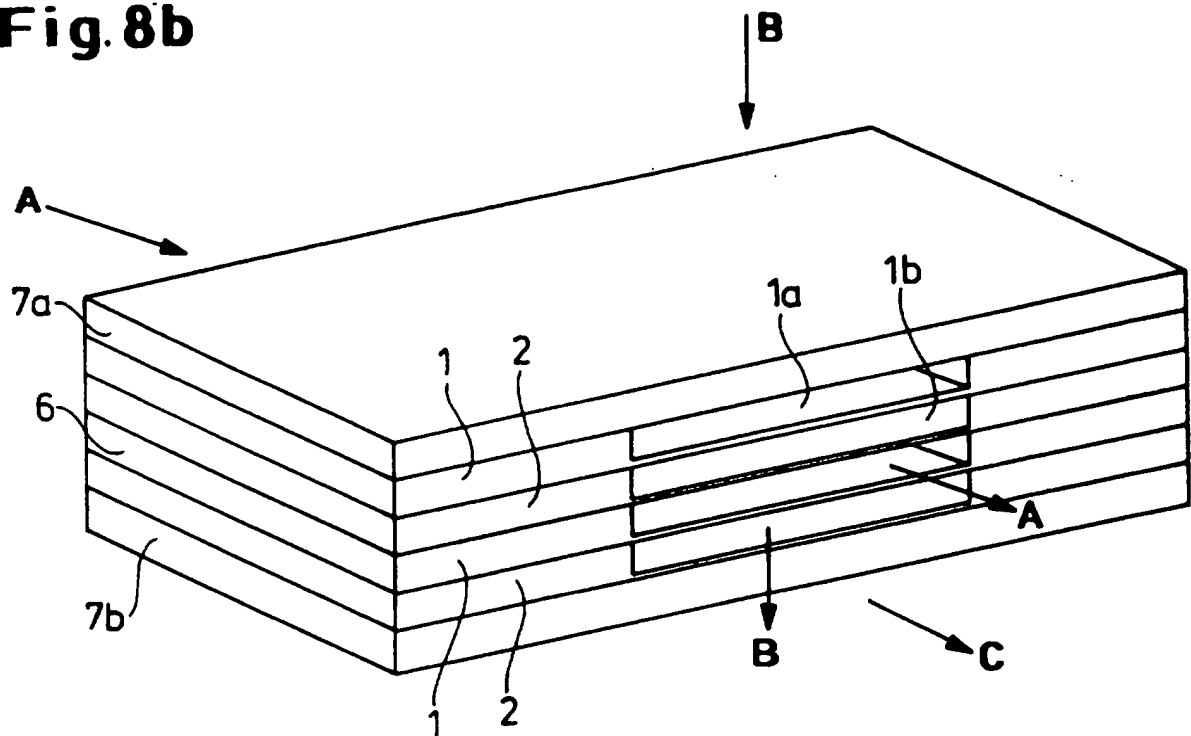
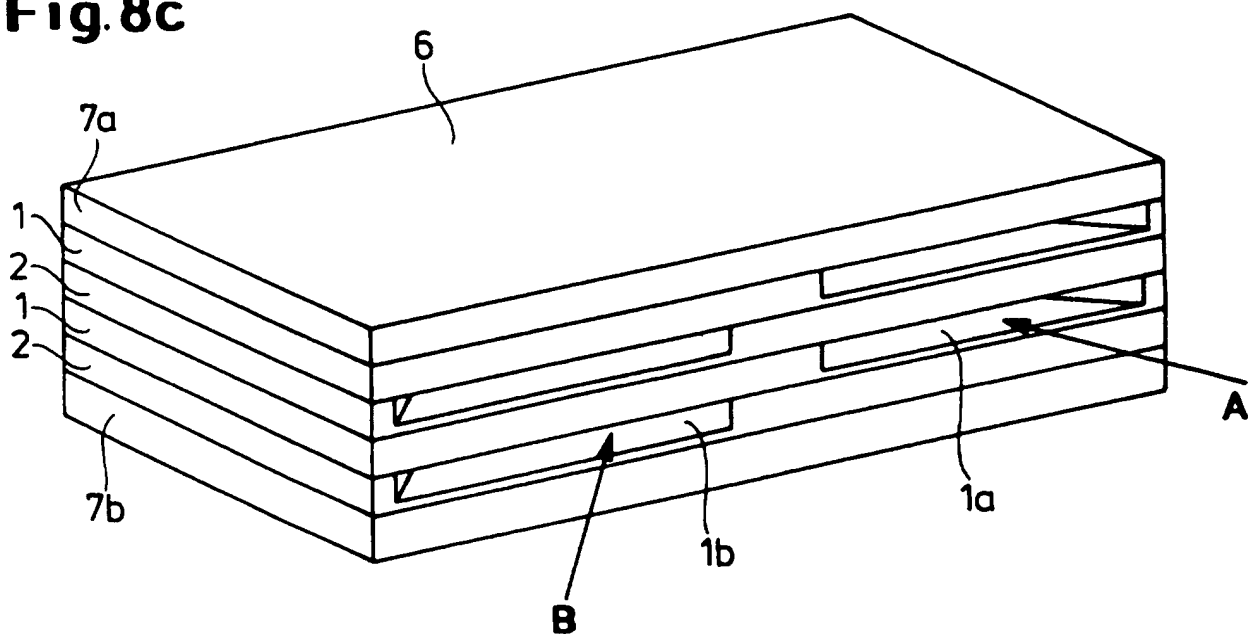
**Fig. 7**

- Glatstrahldüse
- - ○ - - Mikrostruktur-Mischer ( $d=0,07\text{mm}$ ,  $b=0,1\text{mm}$ )
- - ■ - - Mikrostruktur-Lamellenmischer ( $d=0,07\text{mm}$ ,  $b=4\text{mm}$ )

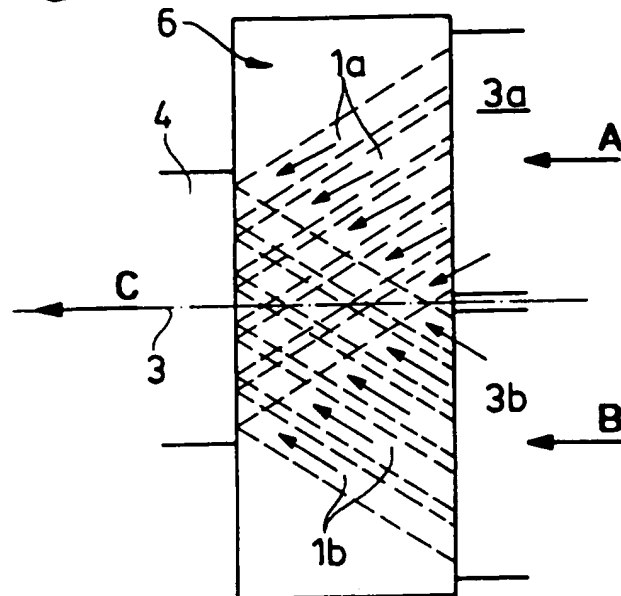
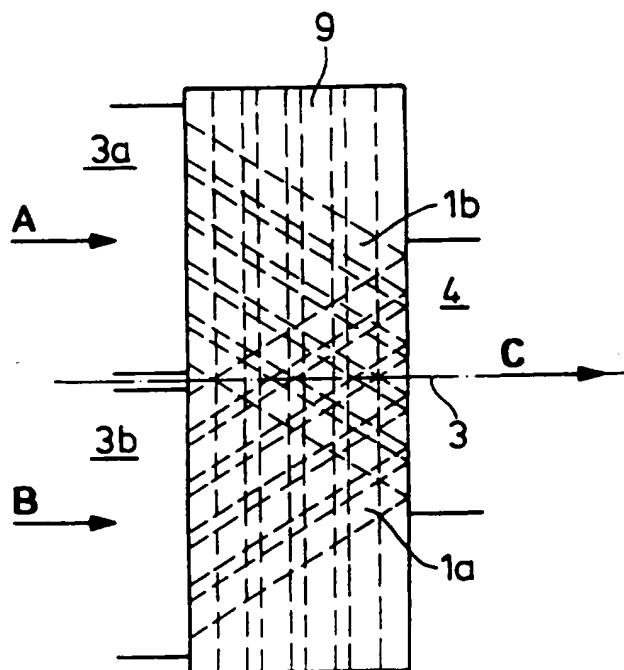
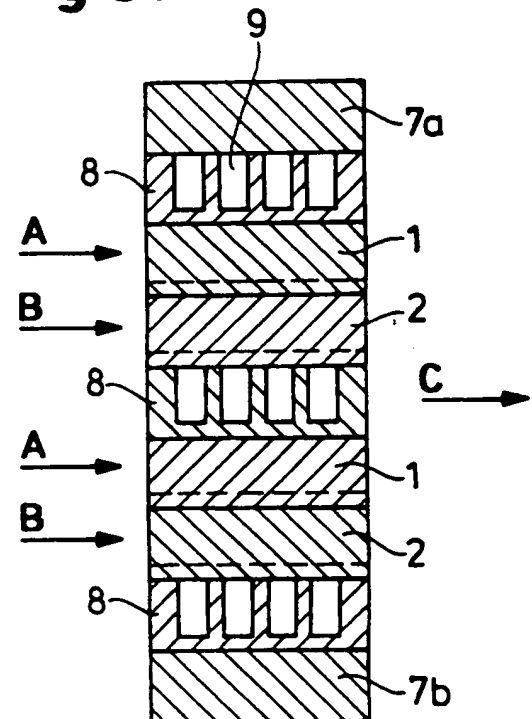
„ 7 / 10 “

**Fig. 8a**

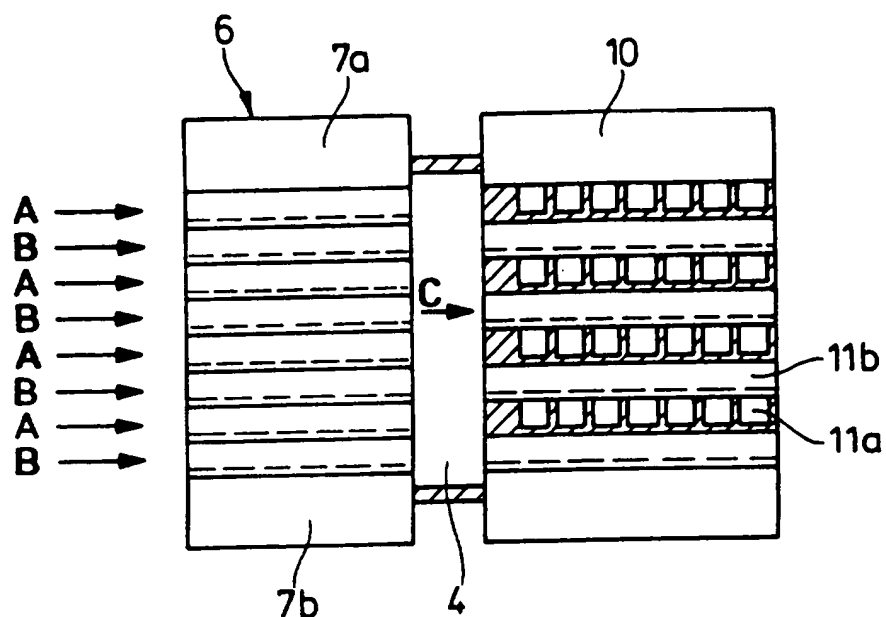
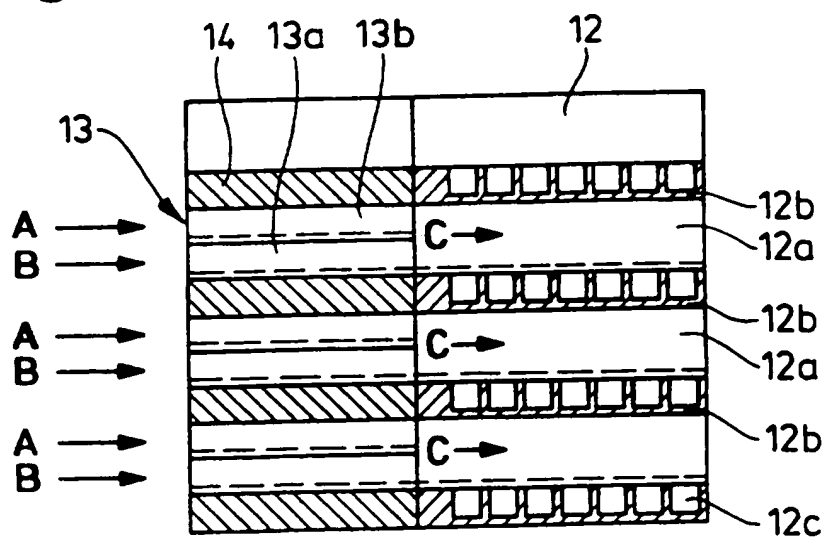
.. 8 / 10 "

**Fig. 8b****Fig. 8c**

.. 9 / 10 "

**Fig. 8d****Fig. 9a****Fig. 9b**

„ 10 / 10 “

**Fig. 10a****Fig. 10b**



A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER  
IPC 6 B01F5/04 B01J19/24

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 6 B01F B01J

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X A	FR,A,1 261 312 (COMPAGNIE DE SAINT-GOBAIN) 11 September 1961 see page 1, paragraph 1 see figure 1 see page 1, paragraph 3 ---	1,6 2-5,7-10
X A	DE,C,732 632 (KRAFTANLAGEN) 8 March 1943 see page 2, line 40-45 see page 2, line 79-82 see claim 1; figures 1-4 ---	1,6 2-5,7-10
X A	GB,A,612 012 (WHEELER, H., S.) 9 October 1945 see figure 4 ---	1,6 2-5,7-10
A	DE,A,31 14 195 (MUNTERS AB CARL) 28 January 1982 see figures 1-13 ---	1-10
-/--		

☒ Further documents are listed in the continuation of box C.

☒ Patent family members are listed in annex.

\* Special categories of cited documents:

- \*A\* document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- \*E\* earlier document but published on or after the international filing date
- \*L\* document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- \*O\* document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- \*P\* document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- \*T\* later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- \*X\* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- \*Y\* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
- \*&\* document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

28 January 1997

Date of mailing of the international search report

27.02.97

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Kanoldt, W

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

national Application No

PCT/EP 96/04665

## C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	DE,A,22 01 016 (DOW CORNING) 23 November 1972 see figures 1-13	1-10
P,A	--- WO,A,95 30476 (BAYER AG ;KARLSRUHE FORSCHZENT (DE); SCHUBERT KLAUS (DE); BIER WIL) 16 November 1995 -----	

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
FR-A-1261312	11-09-61	NONE	-
DE-C-732632		NONE	
GB-A-612012		NONE	
DE-A-3114195	28-01-82	SE-B- 432059	19-03-84
		FR-A- 2480135	16-10-81
		GB-A,B 2073604	21-10-81
		JP-C- 1582172	11-10-90
		JP-B- 2005448	02-02-90
		JP-A- 56158134	05-12-81
		SE-A- 8002770	12-10-81
DE-A-2201016	23-11-72	BE-A- 777862	10-07-72
		FR-A- 2127002	13-10-72
		GB-A- 1333531	10-10-73
WO-A-9530476	16-11-95	DE-A- 4416343	16-11-95
		DE-A- 4433439	21-03-96
		WO-A- 9530475	16-11-95

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES  
IPK 6 B01F5/04 B01J19/24

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)  
IPK 6 B01F B01J

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	FR,A,1 261 312 (COMPAGNIE DE SAINT-GOBAIN) 11.September 1961	1,6
A	siehe Seite 1, Absatz 1 siehe Abbildung 1 siehe Seite 1, Absatz 3 ---	2-5,7-10
X	DE,C,732 632 (KRAFTANLAGEN) 8.März 1943	1,6
A	siehe Seite 2, Zeile 40-45 siehe Seite 2, Zeile 79-82 siehe Anspruch 1; Abbildungen 1-4 ---	2-5,7-10
X	GB,A,612 012 (WHEELER, H., S.) 9.Oktober 1945	1,6
A	siehe Abbildung 4 ---	2-5,7-10
A	DE,A,31 14 195 (MUNTERS AB CARL) 28.Januar 1982 siehe Abbildungen 1-13 ---	1-10
	-/-	

☒ Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

☒ Siehe Anhang Patentfamilie

\* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

"E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung, die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung, die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

"&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche  28.Januar 1997	Absendedatum des internationalen Recherchenberichts  27.02.97
Name und Postanschrift der Internationale Recherchenbehörde Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016	Bevollmächtigter Bediensteter  Kanoldt, W

## C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	DE,A,22 01 016 (DOW CORNING) 23.November 1972. siehe Abbildungen 1-13 ---	1-10
P,A	WO,A,95 30476 (BAYER AG ;KARLSRUHE FORSCHZENT (DE); SCHUBERT KLAUS (DE); BIER WIL) 16.November 1995 -----	

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
FR-A-1261312	11-09-61	KEINE	-
DE-C-732632		KEINE	
GB-A-612012		KEINE	
DE-A-3114195	28-01-82	SE-B- 432059	19-03-84
		FR-A- 2480135	16-10-81
		GB-A,B 2073604	21-10-81
		JP-C- 1582172	11-10-90
		JP-B- 2005448	02-02-90
		JP-A- 56158134	05-12-81
		SE-A- 8002770	12-10-81
DE-A-2201016	23-11-72	BE-A- 777862	10-07-72
		FR-A- 2127002	13-10-72
		GB-A- 1333531	10-10-73
WO-A-9530476	16-11-95	DE-A- 4416343	16-11-95
		DE-A- 4433439	21-03-96
		WO-A- 9530475	16-11-95

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☒ FADED TEXT OR DRAWING
- ☒ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☒ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☒ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**